



## 溶融炭酸塩型燃料電池発電システムに関する研究

著者	渡邊 隆夫
号	1687
発行年	1995
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/10494">http://hdl.handle.net/10097/10494</a>

氏 名 渡 邊 隆 夫

授 与 学 位 博 士 ( 工 学 )

学 位 授 与 年 月 日 平 成 8 年 3 月 15 日

学 位 授 与 の 根 拠 法 規 学 位 規 則 第 4 条 第 2 項

最 終 学 歴 昭 和 56 年 3 月

東北大学大学院工学研究科電気及通信工学専攻前期課程修了

学 位 論 文 題 目 溶融炭酸塩型燃料電池発電システムに関する研究

論 文 審 査 委 員 東北大学教授 内田 勇 東北大学教授 奥脇 昭嗣

東北大学教授 松本 繁

## 論 文 内 容 要 旨

### 1. 研究の背景

世界のエネルギー需要は増大を続け、需給のひっ迫化が予想される中で、我が国の電力需要はエネルギー総需要を上回る伸びで増大している。化石燃料を用いてクリーンなエネルギーである電力を供給する火力発電は、今後とも重要な電源として位置付けられ、高効率化が強く求められている。新型の火力発電方式は、高効率化のため、複合発電が主流となるものと考えられ、燃料電池は石炭ガス化複合発電とならぶ主要な発電方式として期待できる。その中でも溶融炭酸塩型燃料電池(MCFC)は、石炭も燃料として利用できる大型の複合発電システムとして、実用化が期待できる燃料電池発電方式である。

MCFCの開発は、米国を中心に研究が進められてきたが、我が国においても高効率電源の主力として、1981年から通商産業省工業技術院によって取り上げられてから開発が本格化した。開発ではまず第Ⅰ期として、1kW級スタック(積層電池)による基本性能や構造の確認・検証が行われ、10kW級スタックまでのスケールアップが行われた。しかし、それまではMCFCスタックの基本的な運転方式や特性はほとんど明らかではなく、将来的な発電システムの構成や特性についても明確ではなかった。さらに1988年からは第Ⅱ期として、新たな製作技術・運転技術・評価技術や、より長期に及ぶ開発期間と多額の資金を要する1000kW級パイロットプラントの開発へと移行してきた。その中で電池開発に関しては、現在では世界的にも最大規模である100kW級スタックによる性能評価が計画されてきた。しかし、そのために必要となる、発電システムの構成を考慮した大型電池の運転技術や、その性能分析・評価技術については従来ほとんど検討がなされていなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では、MCFC発電システムの実用化に向けて、国の計画に平行しつつ、これまで十分検討されていなかったシステムとしての適用方式、構成、運転方式の検討を行う。さらに100kW級スタックの前段階として10kW級スタックを対象として、初めて実施した他機器との組み合わせによる実運転・試験を通して、発電システムとしての実運転への適用性について検討・評価する。

### 3. 研究の結果

#### 3.1 溶融炭酸塩型燃料電池の基本特性(第2章)

MCFCの発電原理、発電の基本構成単位であるセルの構造にもとづき、その特性測定手法についてまず検討した。電池特性を示す基本的な指標は電圧である。無負荷時の電圧は電池内部のガス組成変化等を反映しており、電池の基本機能診断に有効である。

次に単セルの特性を検討した。まず、基本特性として負荷電流の増大に伴って電圧は直線的に低下することがわかった。また、ガス利用率は特に燃料側において効率に関係するもう一つの重要な指標であるが、利用率増大に伴って電圧は低下し、両者の兼ね合いが重要であること、温度や圧力を高くすれば電圧は上昇し、より高効率な発電が期待できることが明らかとなった。

### 3.2 熔融炭酸塩型燃料電池発電システムの効率解析 (第3章)

MCFC発電システムの構成について、まずその基本的考え方と構成条件を示した。全体システムはいくつかのサブシステムに分けることができるが、電池サブシステムが全体の特性を大きく左右する。

次に、電池サブシステムを対象に、高効率を得るための方法について、計算機解析によって検討した。電池のモデルは単セルの基本特性をもとに作成した。例えば電池サブシステムに要求される条件の一つに発生熱の適切な除去がある。電池の冷却方式としてはカソードガスリサイクル方式、熱交換器方式、冷却

媒体方式があるが、その違いによるシステムの発電効率の違いを図1に示す。カソードガスリサイクル方式ではタービン圧縮機による付加発電も行うことができ、最も高い効率を得られた。また、燃料ガス中から炭素析出を抑制するにはアノードガスリサイクル方式が有効であることがわかった。

ガスリサイクル方式を適用したシステムの発電効率(送電端, HHV基準)は運転圧力によって大きく変化するが、200MW級の天然ガス利用システムでは図2に示すように、約0.6MPaの電池運転圧力で、53.4%と高い値が得られた。また、500MW級の石炭利用システムでは約1.6MPaの電池運転圧力で、49.3%と高い値となった。このようにシステムにおいてMCFCの性能を最大限に引き出すにはガスリサイクル方式を適用すること、加圧運転条件とすることが有効なことを明らかとした。

### 3.3 熔融炭酸塩型燃料電池システムの定常発電特性 (第4章)

大型化した数kW級のMCFCスタックに対して、将来のシステムに不可欠な加圧・ガスリサイクル運転の適用を試み、得られた実発電試験結果について定常特性を中心に検討した。

まず、これまで国内で実施されたことの無かったスタックの加圧運転を、6kW級スタックを用いて単セルと同様の方法で実現できた。その特性を図3に示す。電圧は単セルと同様に、圧力の対数に比例して増大したが、 $\text{CH}_4$ 生成による高圧領域での電圧飽和現象がスタックでも認められることがわかった。

次にアノードガス、カソードガス、 $\text{CO}_2$ の各ガスリサイクルによるスタック運転についてその方式と特性を検証した。まず、カソードガスリサイクルはスタック冷却に有効であることを実証した。アノードガスリサイクルでは、図4

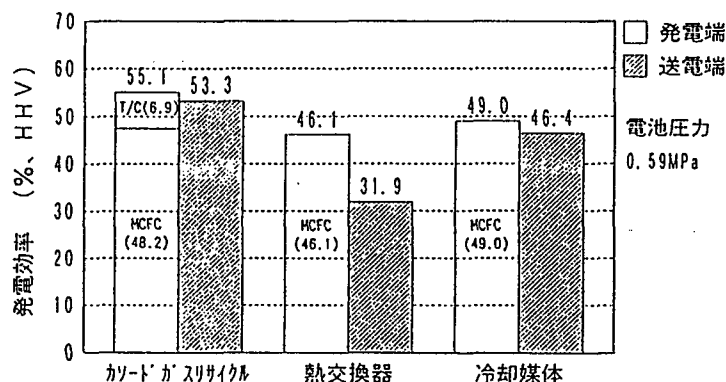


図1 スタック冷却方式による発電効率の比較

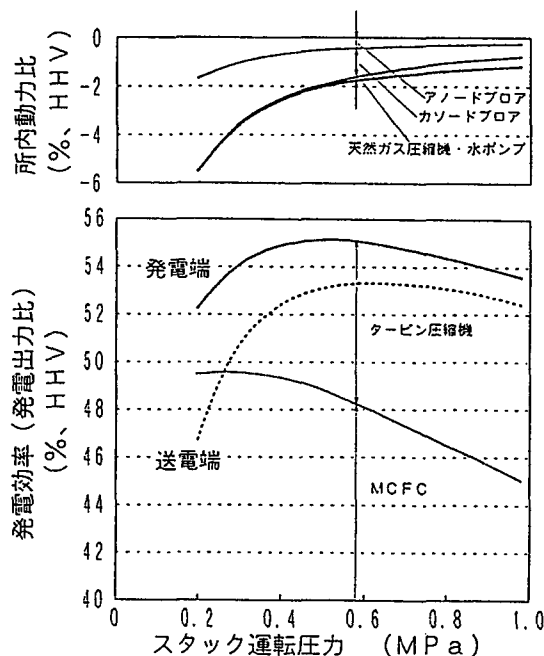


図2 天然ガス利用システムの効率の圧力による変化

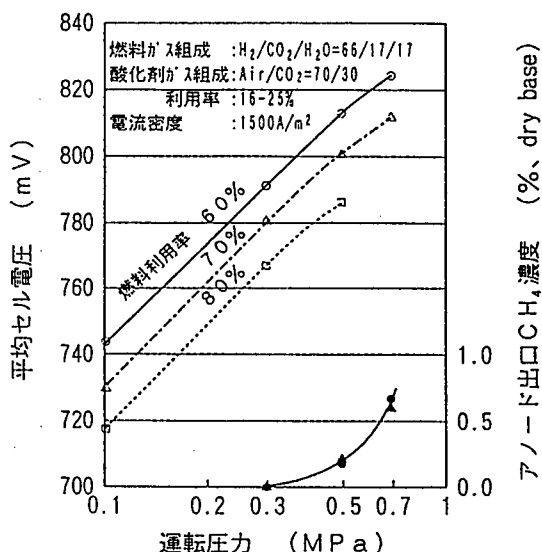


図3 6 kW スタックの運転圧力特性

に示すようにセル電圧のばらつきを抑えられ、同時に全燃料利用率を高められることを示した他、燃料ガス中での $\text{CH}_4$ 生成を抑制できることを明らかにした。このとき実現した全燃料利用率は最大90%であり、電池効率としても53%を達成した。また、 $\text{CO}_2$ リサイクルによる、外部からの $\text{CO}_2$ 補給なしでの発電状態も実証した。さらに、システム解析にも用いた電池モデルによれば、ガスリサイクル試験結果を比較的良好に表現できることがわかった。

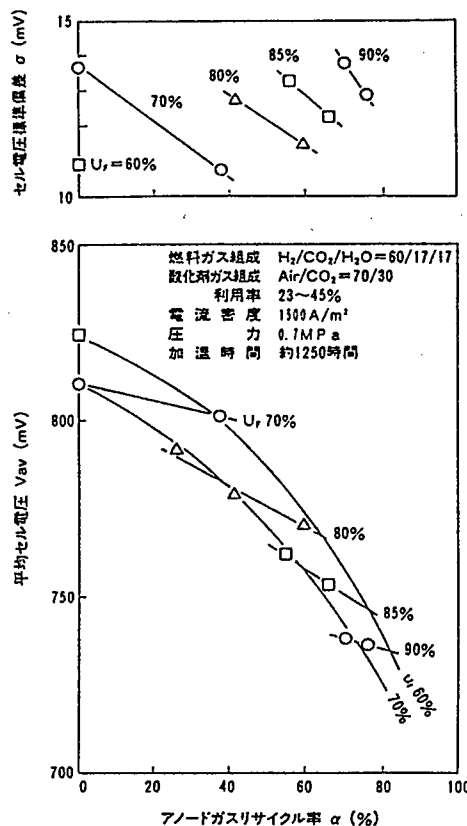


図4 アノードガスリサイクルによる電圧のばらつき低減と高燃料利用率の実現

### 3.4 熔融炭酸塩型燃料電池システムの非定常発電特性（第5章）

スタックおよびガスリサイクルシステムの非定常運転特性について検討した。

まず、加圧・ガスリサイクルシステムの非定常試験として、 $\text{CO}_2$ 無補給条件での起動を実証した。また、負荷変化運転においては定燃料利用率運転が有効であることがわかった。

これらの試験研究に並行して、これまで開発されていなかったスタック本体の特性を非定常条件で解析するモデルを開発した。負荷を増大させていった場合の電圧の応答について、10 kW級スタックでの試験結果と解析結果を図5に比較した。解析結果は試験結果の応答性に定性的に一致し、解析方法が妥当であることが明らかになった。さらに、負荷変化に対する電圧応答や内部の温度・電流分布の応答をより詳細に解析したところ、酸化剤ガス出口に相当する部分の温度監視が重要であることがわかった。

また、ガスリサイクルシステムとしての非定常特性を記述するモデルを開発した。図6はアノードガスリサイクル率を変化

させた場合の各種プロセス量の応答について、試験結果と解析結果とを比較したものである。その結果、両者の応答は定性的に一致し、モデルの妥当性が示された。本解析によって、例えば図6に示したように、スタック電圧の一時的な変化は、実験では測定不可能な試験パラメータである燃料利用率の一時的な変化に起因することが推定できるようにな

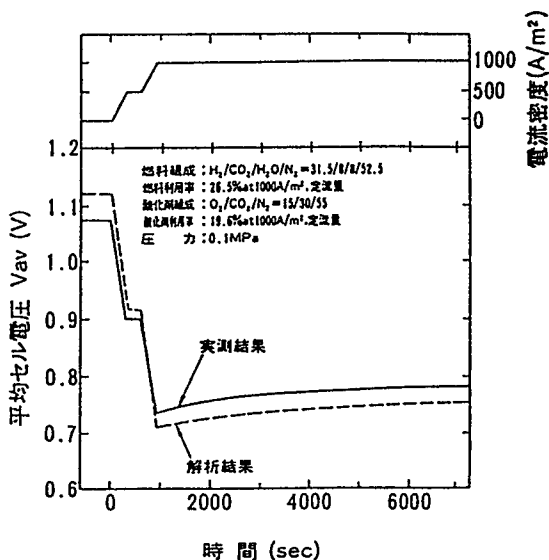


図5 スタック電圧の負荷応答性解析

り、本モデルがシステム特性解析に有用となることが示された。これらの解析により、スタックへのガス供給不足や機器過昇温を生じさせない制御方法や運転条件変更速度の設定が重要であることが明らかになった。

### 3.5 結論と今後の展望（第6章）

以上の結果から MCFC の単セルからスタックまでの特性・運転手法に関する基本的理解が得られ、スタックの大型化技術、システム化技術は開発途上にはあるものの、MCFC は発電システムとして要求される基本的要件を満たすものであることが明らかとなった。また、今後必要となる技術開発のための支援手段としてスタック本体とシステムのモデル化とそのプログラム化を行うことができた。現時点でこれらをもとに判断すれば、MCFC は今後の新型火力発電システムの主力に十分なり得る発電方式であると結論できる。

本研究を通じて開発したスタックの加圧運転方式やガスリサイクル運転方式は、電力中央研究所が国のニューサンシャイン計画において実施した100kW 級スタック性能評価のための運転試験方式に直接反映された。また、本研究におけるシステムやスタックの解析結果は100kW 級スタック試験条件の設定や性能解析のための重要な参照情報となった。100kW 級スタックの試験結果は、現在建設中の1000kW 級パイロットプラントに反映されている。

本論文には示さなかったが、電池本体の高性能化、長寿命化、大型化、低コスト化は実用化のための重要な課題である。今後、本研究成果を参照しつつ、これらの課題解決に向けて開発を継続していく必要がある。

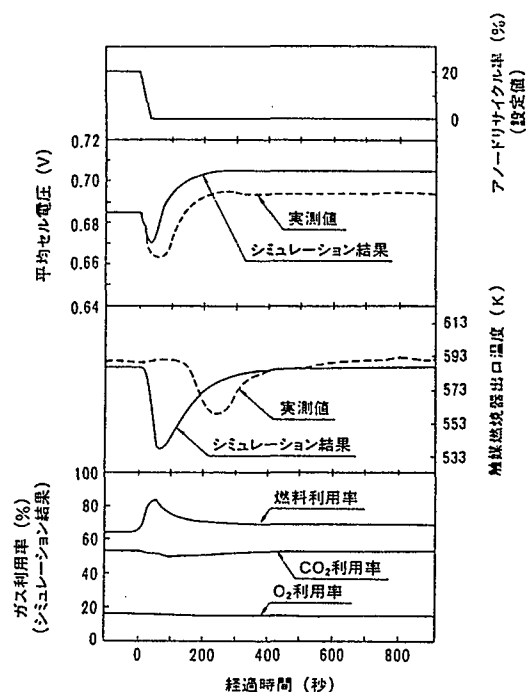


図6 ガスリサイクル運転特性の解析

## 審査結果の要旨

熔融炭酸塩型燃料電池（MCFC）は石炭も利用できる次世代の高効率発電方式の一つとして実用化が期待されている。本燃料電池は現在 1000kW 級パイロットプラントが建設される段階に達しつつあるが、ここに至る過程においては、単セルからプラント用スタックへと大型化する際の基本的な運転方式やスタック特性、発電システムの構成ならびに大型電池の運転技術、性能分析・評価技術等の研究開発が重要な柱であった。本研究は、この様な背景の中で、国の開発計画に並行しつつ、システムとしての適用方式、構成、運転方式を検討し、さらに 10kW 級スタックを対象に他機器との組み合わせによる発電システムとしての実運転への適用性について検討・評価したもので、全編 6 章より構成される。

第 1 章は序論であり、新型火力発電システムにおける燃料電池発電技術の位置づけと展望を要約し、本研究の目的を述べている。

第 2 章では、MCFC の動作原理、単セル構成を概説し、セル特性測定方法と基本特性について検討し、高効率発電技術へと発展させるための基本的な指針を与えている。

第 3 章では、発電システムの構成について、先ずその基本的考え方と構成条件を示し、電池サブシステムが全体の特性を大きく左右することを示した。次に、電池サブシステムを対象に、高効率を得るための方法について計算機解析によって検討し、MCFC の性能を最大限に引き出すにはガスリサイクル方式を適用することと加圧運転条件とすることが有効なことを明らかにしている。

第 4 章では、実際のスタックを用いての加圧ガスリサイクル運転試験結果についてその定常特性を解析し、カソードガスリサイクルはスタック冷却に有効であること、アノードガスリサイクルは、構成セル電圧のばらつきを抑え、同時に全燃料利用率を高めると共に、燃料ガス中でのメタン生成を抑制できること等を明らかにしている。また、炭酸ガスリサイクルによる、外部からの CO<sub>2</sub> 補給なしでの発電開始方法も実証した。これらは発電システム実現のための重要な知見である。

第 5 章では、非定常特性について述べている。スタックならびにガスリサイクルシステムの非定常モデルを開発し、試験結果との比較でその妥当性を立証している。スタックモデルでは、非定常運転時における内部監視手法の指針を与えている。また、ガスリサイクルシステムモデルでは、電池特性解析手法への応用例を示している。これらのモデルは発電システム設計や特性解析に有用な手法を数多く提供している。

第 6 章は結論である。

以上要するに本論文は、高効率を実現する MCFC 発電システム構成を検討・実証し、特性解析手法を明示し、大型燃料電池とシステムの運転手法や特性を明らかにしたもので、燃料電池発電システムの実用化と工学電気化学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。